

# LA VARIACIÓN SAZONAL DE $^{226}\text{Ra}$ Y $^{222}\text{Rn}$ EN FUENTES DE AGUA MINERAL EN AGUAS DA PRATA - BRASIL

Joselene de Oliveira, Barbara Mazzilli,  
Maria Helena de Oliveira Sampa, Bernadete Silva

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares  
Comissão Nacional de Energia Nuclear-SP  
Caixa Postal 11049  
São Paulo, Brasil

## RESUMEN

Fueron analizados los niveles de concentración de  $^{226}\text{Ra}$  y  $^{222}\text{Rn}$  en la mayoría de las fuentes de agua mineral disponibles en la región de Aguas da Prata, localizada en la meseta de Poços de Caldas, una de las mayores intrusiones alcalinas del mundo. Son muchos los centros de salud en la región con aguas termales y minerales. Las fuentes de Aguas da Prata presentan una gran variedad de composiciones. Se observaron sales de bicarbonato, carbonato y sulfato en aguas minerales. La determinación de  $^{226}\text{Ra}$  fue realizada mediante el medida alfa total del precipitado de  $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$ . La medición fue realizada en un contador proporcional de flujo de gas de bajo fondo. Las concentraciones de  $^{222}\text{Rn}$  fueron determinadas por el método de cintilación líquida. Las muestras de agua fueron realizadas aleatoriamente en 9 fuentes durante el período de un año para evaluar la variación sazonal de radionucléidos. Se encontraron concentraciones mas bajas en la estación de lluvias (verano) que representa 80% del caudal anual de lluvias de la región (1500mm/año). Las mayores concentraciones, hasta 2223mBq/L para  $^{226}\text{Ra}$  y 131Bq/L para  $^{222}\text{Rn}$  fueron observadas en aguas con bajo nivel de sales solubles. Las aguas con altos niveles de sales carbonatadas y sulfatadas presentaron valores máximos de 316 mBq/L para  $^{226}\text{Ra}$  y 30 Bq/L para  $^{222}\text{Rn}$ . Este comportamiento se debió principalmente a las propiedades fisicoquímicas de estos radionucléidos así como a la estructura litológica de los acuíferos.

## INTRODUCCION

En las últimas décadas, el comportamiento del decaimiento de la serie de nucléidos del uranio y del torio en las aguas subterráneas ha demostrado la enorme aplicación para comprender los mecanismos de las reacciones geoquímicas y los procesos de transporte en los sistemas de agua-roca. Son dos los tópicos principales que nos ayudarán a comprender mejor esta interacción: el papel que los sólidos de los acuíferos ejercen en el control del comportamiento de los radionucléidos en el agua y la composición total de la solución.

En este artículo determinamos la concentración de  $^{226}\text{Ra}$  y  $^{222}\text{Rn}$  en las fuentes de agua mineral de Aguas da Prata a fin de evaluar la variación sazonal de estos radionucléidos. Los resultados obtenidos fueron relacionados con la composición química de las aguas de las fuentes y con la litología del acuífero.

Aguas da Prata se localiza en una de las regiones de mayor radioactividad natural del Brasil. Las fuentes elegidas para este estudio fueron: Vilela, Platina, Padre, Paiol, Balneário Teotônio Vilela, Prata Antiga, Prata Nova, Prata Radioativa y Vitória.

Segun estudios previos relacionados a la temperatura local, lluvias, evaporación y humedad relativa, el clima de la región puede ser considerado como tropical y subtropical, con temporadas de seca bien definidas desde Abril a Octubre y de lluvia de Octubre a Marzo. La temperatura promedio es de  $20 \pm 5^\circ\text{C}$  y la precipitación pluvial es de aproximadamente 1500 mm/año [1].

A respecto de la litología de las acuíferas, las fuentes estudiadas pueden ser clasificadas en dos grupos: el primero incluye las fuentes de Vilela y Prata Radioativa y se relaciona con rocas areníferas, el segundo es compuesto por las otras fuentes y está asociado a rocas alcalinas de origen volcánica [2].

El agua de estas últimas llega a la superficie por flujo ascendente y tiene origen profunda, son muy mineralizadas y muestran niveles de pH de cerca de 7,0. Estas aguas presentan altas concentraciones de sales de bicarbonato y sulfato de sodio. Por el contrario, las aguas que surgen en acuíferos areníferos son poco mineralizadas, no tienen origen en la profundidad, presentan baja conductividad y su pH es de aproximadamente 5,0.

## MATERIAL Y METODOS

Las muestras de agua fueron recogidas durante el período de Junio del 1992 a Julio del 1993 en las fuentes citadas con el propósito de cubrir todas las estaciones durante 1 año.

Para la determinación de  $^{226}\text{Ra}$ , las muestras fueron recogidas en recipientes de 10L, colocandose previamente ácido nítrico 6M a fin de obtener un pH inferior a 1,5. Este procedimiento fue adoptado para prevenir perdidas por adsorción de los radionuclídeos en los recipientes. Las muestras fueron evaporadas a fin de reducir su volumen de 5L para 1L y cada análisis fue realizada por duplicado.

El  $^{226}\text{Ra}$  fue determinado mediante la co-precipitación con sulfato de bario a un pH 4,5-5,0 en la presencia de ácido etilendiamino tetracético, después de la separación de sus interferentes por complejación con NTA a un pH de 12,5 - 13,0. El  $^{226}\text{Ra}$  fue determinado por la medida alfa total del precipitado de  $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$  después del decaimiento de  $^{224}\text{Ra}$  y  $^{223}\text{Ra}$ . o sea, después de 25 días. La medición fue realizada en un contador proporcional de flujo de gas de bajo fondo. El límite de detección típico más bajo por este método fue de 2,2 mBq/L para  $^{226}\text{Ra}$ , con un grado de confianza de 95% [3].

La concentración de  $^{222}\text{Rn}$  fue determinada por el método de cintilación líquida. Mediante este análisis fueron recogidas las muestras directamente en los recipientes de medida en los cuales se colocó previamente la solución de cintilación Aquasol. Los límites de detección típicos más bajos para este método fueron de 0.2 Bq/L y el grado de confianza fue de 95 % [4].

## RESULTADOS Y CONCLUSIONES

La tabla 1 presenta los datos de la variación de la concentración de radionuclídeos. Las concentraciones del  $^{226}\text{Ra}$  variaran de <2,2 a 2223 mBq/L, los valores más bajos fueron observados en la fuente Platina, cuya composición es básicamente de sales de carbonato y sulfato. Los valores más altos corresponden a Vilela, que presenta los niveles más bajos de sales disueltas.

Las concentraciones del  $^{222}\text{Rn}$  variaron de <0,2 a 131 Bq/L. Los valores menores se observaron en la fuente do Padre con composición de sales de bicarbonato de sodio, los mayores valores corresponden a Vilela, que presenta niveles bajos de sales solubles.

En lo que se refiere a la composición química del agua podemos concluir que las aguas que presentaron bajo nivel de sales disueltas mostraron mayores concentraciones de  $^{226}\text{Ra}$  y  $^{222}\text{Rn}$ . En este caso específico, tales concentraciones de actividad pueden ser explicadas por el hecho que estas fuentes están asociadas con rocas areníferas con 0,3 % de  $\text{U}_3\text{O}_8$  en su composición [5]. Consecuentemente el proceso de transporte que prevalece para el radio y el radonio en el sistema de agua-roca es el retraining nuclear alfa, una vez que estas aguas son poco mineralizadas y el tiempo de interacción entre el agua y la roca es corto.

Segun la literatura [6], el radio es más soluble en aguas con alto o bajo pH y no en aquellas de pHs medios. Este comportamiento fue observado en este trabajo donde las fuentes de agua con pHs en vuelta de 5,0 presentaron mayores concentraciones de  $^{226}\text{Ra}$  y  $^{222}\text{Rn}$ .

Tabla I. Variación de la concentración de  $^{226}\text{Ra}$  y  $^{222}\text{Rn}$  en fuentes de aguas minerales de Aguas da Prata.

| Fuente                    | Variación de concentración del $^{226}\text{Ra}$ (mBq/L) | Variación de concentración del $^{222}\text{Rn}$ (Bq/L) |
|---------------------------|--|---|
| Vilela                    | 1430 – 2223  | 104 – 131   |
| Paíol                     | < 2,2 – 10,7   | 5,3 – 6,3   |
| Padre                     | < 2,2 – 11,4   | < 0,2 – 2,3   |
| Platina                   | < 2,2 – 4,4  | 0,9 – 7,2   |
| Prata Nova                | 42,5 – 63,6  | 22,3 – 30,4   |
| Prata Antiga              | 126 – 182  | 2,6 – 5,7   |
| Prata Radioativa          | 32,9 – 49,1  | 7,7 – 15,5  |
| Vitória                   | 159 – 316  | 4,3 – 18,6  |
| Balneário Teotônio Vilela | 22,6 – 87,7  | 1,2 – 10,4  |

El  $\text{Ra}^{2+}$  es ligeramente soluble en agua, sin embargo un nivel de sulfato alto favorecerá su remoción como cristales de sulfato mixto, o sea como  $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$ , o, en el caso de niveles altos de carbonato, como  $(\text{M},\text{Ra})\text{CO}_3$ . Este comportamiento puede explicar porque las concentraciones de  $^{226}\text{Ra}$  y de  $^{222}\text{Rn}$  son menores en fuentes de agua que presentan sales de sulfato y carbonato. Además, el proceso de transporte del  $^{226}\text{Ra}$  que prevalece en tales sistemas de agua-roca es la reacción química, una vez que estas aguas son mineralizadas y presentan un periodo de contacto relativamente mayor entre el agua y la roca.

Las figuras 1 y 2 presentan la distribución de las concentraciones de  $^{226}\text{Ra}$  y  $^{222}\text{Rn}$  en las fuentes estudiadas durante el período de Junio del 1992 a Julio del 1993.

Basados en los resultados obtenidos para las concentraciones de radionucléidos durante 1 año, podemos concluir que las concentraciones menores fueron halladas en la estación de lluvias (verano), que representa 80% del caudal anual de lluvias de la región (1500 mm/año). Sin embargo, algunas fuentes relacionadas con rocas alcalinas de origen volcánica presentaron una disminución de las concentraciones de  $^{226}\text{Ra}$  y  $^{222}\text{Rn}$  también en la temporada de seca. Este hecho es posible una vez que estas fuentes tienen origen en la profundidad y sus aguas son desleídas enseguida de lo verano.

Figura 1. Variación sazonal de la concentración de  $^{226}\text{Ra}$  en las aguas de las fuentes estudiadas en Aguas da Prata.

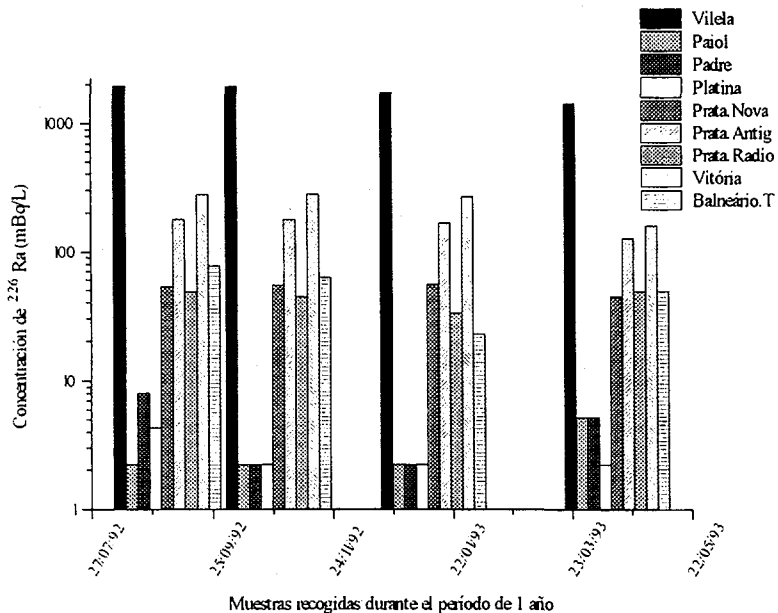
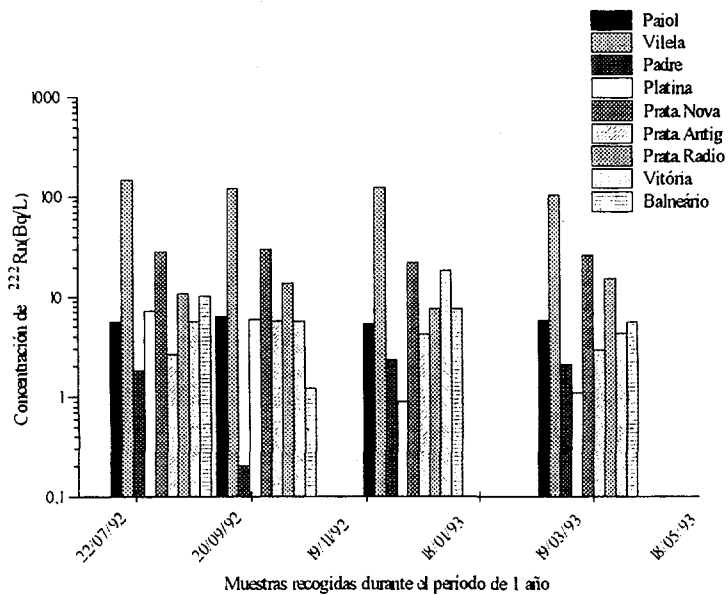


Figura 2. Variación sazonal de la concentración de  $^{222}\text{Rn}$  en las aguas de las fuentes estudiadas en Aguas da Prata.



## REFERENCIAS

[1]SZIKSZAY,M. Hidrogeoquímica das fontes de Águas da Prata, Estado de São Paulo:origem,classificação e caracterização. São Paulo, 1981. (Tese de livre-docência. Instituto de Geociências da Universidade de São Paulo).v.1.

[2]SZIKSZAY,M.,SAMPA,M.H.O. Variação da radioatividade nas águas das fontes da estância de Águas da Prata, Bol.Inst.Geocien. 13 (1982) 25-42.

[3]OLIVEIRA,J. Determinação de  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$  em águas minerais da região de Águas da Prata, São Paulo (1993). (Dissertação de mestrado.Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares).

[4]SAMPA,M.H.O. Estudo e desenvolvimento de métodos analíticos para a determinação de radioatividade natural em águas, São Paulo (1979). (Dissertação de mestrado. Instituto de Energia Atômica. IEA-DT-130).

[5]LONGO,O.W. Águas radioativas no Estado de São Paulo, Rev.Inst.Geocien. 19 (1967) 27-48.

[6]BENES,P.,OBDRZALEK,M.,CEJCHANOVA,M. The physicochemical forms of traces of radium in aqueous solutions containing chlorides, sulphates and carbonates, Radiochem.Radioanal.Lett. 50 4 (1982) 277.

## ABSTRACT

Concentration levels of  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{222}\text{Rn}$  have been analysed in most of the mineral spring waters available in the Aguas da Prata region, which is located in the Poços de Caldas plateau, one of the biggest weathered alkaline intrusions of the world. In this plateau can be found many health resorts based on springs of thermal and mineral waters. The Aguas da Prata spring waters show a large variety of composition. It has been observed bicarbonates, carbonates and sulphates salts in these mineral waters. The  $^{226}\text{Ra}$  was determined by gross alpha counting of a  $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$  precipitate. The measurement was carried out in a low background gas flow proportional counter. The  $^{222}\text{Rn}$  concentrations were determined by liquid scintillation method. Water samples were randomly collected at 9 spring sites over a period of one year, in order to evaluate the seasonal variation of these radionuclides. Lower concentrations were found mostly in the rainy season (summer), which presents 80% of the annual rainfall of the region (1500 mm/year). Higher concentrations up to 2223 mBq/L for  $^{226}\text{Ra}$  and 131 Bq/L for  $^{222}\text{Rn}$  have been observed in waters with low level of soluble salts. Waters which present high levels of carbonate and sulphate salts showed maximum values of 316 mBq/L for  $^{226}\text{Ra}$  and 30 Bq/L for  $^{222}\text{Rn}$ . This behaviour is mainly due to the physicochemical properties of these radionuclides in water as well as to the lithologic structure of the aquifers.